

1

2

⑤ 成型用樹脂組成物

② 特 願 昭44-88420

② 出 願 昭44(1969)11月6日

⑦ 発 明 者 小川正夫

東京都世田谷区烏山町844

同

阪口文雄

横浜市保土ヶ谷区中希望が丘174

昭和電工希望が丘寮

同

穴戸喜八

横浜市港南区下永谷町659

⑦ 出 願 人 昭和電工株式会社

東京都港区芝大門1の13の9

代 理 人 弁理士 小田島平吉 外1名

発明の詳細な説明

本発明はアイソタクチックポリプロピレンを主量成分とする低温耐衝撃性の成型用樹脂組成物に関する。更に詳しくは、Aアイソタクチックポリプロピレン、B高密度ポリエチレン、Cゴム状の

20 スチレン-ブタジエン共重合体及びDエチレン-プロピレン-非共役ジエン三元重合体の特定配合比から成り、高い曲げ剛さとすぐれた低温耐衝撃とを兼備した四成分系の樹脂組成物に関する。

従来アイソタクチックポリプロピレン（以下 25 PPと略記）の短所である耐衝撃性を改良するため、これに少量のエラストマー成分を混合した各種の組成物が提案されている。しかしながら、これら多くの組成物は耐衝撃性が或る程度改善されているにも拘らず、一方PPの長所であるところ 30 の曲げ剛さは可成り犠牲にされ低下している。例えば特公昭39-25188号、同43-6532号、同43-13377号及び同44-11539号には、PPに対しポリエチレンと、ゴム状のエチレン-プロピレン共重合体、イソブチレン重合 35 体もしくはブタジエン重合体を配合することが提案されており、これらは常温における耐衝撃性の

向上を示しているが、いずれも曲げ剛さは著しく低下し、そして低温における脆弱性に関しては実際にそれほど効果を示さないものもある。

本発明の目的は、高い水準の曲げ剛さを保持しながら、耐衝撃性特に低温における脆弱性が改善されたポリプロピレン組成物を提供することにある。

本発明者等は研究を重ねた結果、PPに対しポリエチレンと、ゴム状のステレン-ブタジエン共 10 重合体及びエチレン-プロピレン-非共役ジエン共重合体の両者とを、適当な割合で配向することによつて所期の目的組成物が得られることを見出し本発明に至つた。

本発明の特徴は、PPとポリエチレンの混合物 15 に対し上記二種のゴム状成分を特定の割合で配合することによつて、これらゴム状成分をそれぞれ単独に配合した場合には実現することのできない高い曲げ剛さとすぐれた低温耐衝撃性とを同時に付与するという予期し得ない相乗の効果を発現せしめた点に存する。

本発明の樹脂組成物は、Aアイソタクチックポリプロピレン50～84重量%、B高密度ポリエチレン10～35重量%、C溶液重合法によるステレン-ブタジエン共重合体少なくとも2重量%及び、Dエチレン-プロピレン-非共役ジエン三元重合体少なくとも2重量%、但しCとDとの含量6～15重量%、から本質的に成る。

本発明におけるAアイソタクチックポリプロピレンの製造方法および特性は当業者に周知であり、これはアイソタクチック部分の含有量30%以上、密度0.880～0.920 g/cm² (23℃)、溶融流れ(MFI)は230℃、2.16 kgの荷重下で0.9～3.0の範囲にある結晶性のものである。またB高密度ポリエチレンは、低圧法ないし中圧法によつて得られる密度0.93～0.98、メルトインデックス(190℃、2.16 kg荷重)0.3～3.0のものである。C溶液重合法によるステレ

ン-ブタジエン共重合体は、少なくとも40モル
%のブタジエンを含有するランダムあるいはブ
ック共重合体のゴム状物質であつて、その製造方
法および特性は例えば特公昭36-15386号、
同36-19286号、同38-2394号および同39-11090号に明らかにされている。
Dエチレン-プロピレン-非共役ジエン三元共重
合体は密度が約0.83~0.88の範囲にあるゴム
状物質であり、それらの製造方法および特性は広
く知られている。

上記四成分の配合比について説明すれば次の通
りである。PPは本発明組成物の主量成分をなす
ものであつて、組成物中50~84%を占めるこ
とができる。(B)成分の高密度ポリエチレンは組成
物中に10~35重量%の範囲内で配合される。
B成分の配合割合が10%未満の場合には本発明
組成物の剛性率が低下し、流れ特性も悪くなるし
又脆化温度も改良されない。また35%を超えて
配合しても脆化温度の改良とならない。C及びD
成分のスチレン-ブタジエン共重合体及びエチレ
ン-プロピレン-非共役ジエン三元共重合体は組
成物中に各々少なくとも2重量%で両者の含量が
6~15重量%配合されるが、その下限以下では
本発明組成物の脆化温度が改良されず、その上限
を超えて配合しても脆化温度の改良は頭打ちとな
り、それにもかかわらず一方流れ特性及び熱劣化
性は低下し好ましくない。

各成分を配合するに当つては、それぞれの成分
が変質しない条件下に常法例えばロール、バンバ
リーミキサーもしくは溶融押出機による機械的方
法、溶媒に溶解した後非溶媒によつて沈殿させる
溶液混合法等いずれの方法をも適用することがで
きる。四成分を同時に混合してもよく、また予め
B、C及びD成分を混合したものをAポリプロピ
レンに配合することもできる。

※ 以下実施例及び比較例を掲げて本発明を更に具
体的に説明する。これらの例において、低温脆弱
性(脆化温度)はモーター駆動脆化温度試験機を
用いASTM D-746に準じて測定した。曲
げ剛さ(曲げ剛性率)はASTM D-747-
58Tに従つた。流れ特性はJIS、K-6758
に準じ2.16kgの荷重下230℃で10分間に
吐出される樹脂組成物をグラム数で表わす。尚、
各組成量はすべて重量%で表わす。

10 実施例 1

ポリプロピレン(MFI, 4, 密度0.90)
60%、ポリエチレン(M, I, 5, 密度0.96)
30%、25%のスチレンを結合含有するランダ
ム型ゴム状スチレンブタジエン共重合体(フィリ
ップスベトロリウム社製、商品名ソルブレン
1204)5%、50%のプロピレンを含有する
ゴム状エチレンプロピレン非共役ジエン共重合体
(U. S. ラバー社製、商品名ロイヤレン502)
5%からなる組成物を8インチロールミル上で
170℃にて、先ず両ゴム全量および、ポリプロ
ピレン5%、ポリエチレン5%を予じめ3分間融
和しさらに残りのポリプロピレンおよびポリエチ
レン全量を6分間混練配合した。この組成物をブ
レス成形機により230℃にて5分間予熱した後、
5分間100kg/cm²にて加圧後20~25℃に
て水冷し、厚さ2mmおよび1mmのシートを作
成して20℃に24時間放置後、試験を行なつた。
脆化温度は-27.8℃、曲げ剛性率は13.7×
10⁴ psi, MFIは3.7であつた。

以下、組成物の配合組成を変えたものについて
同様の方法で試験した結果をまとめて第1表に示
す。なお、ポリエチレンおよびいずれのゴム状物
質をも加えないポリプロピレンの脆化温度は+
20℃、曲げ剛性率は16.0×10⁴ psiであつ

※ 35 続。

第 1 表

	配 合 組 成 重 量 %				曲げ剛性率 psi × 10 ⁴	脆化温度 ℃	MFI g/10分
	ポリプロピ レン	ポリエチレン	スチレンブ タジエン共 重合体	エチレンプロピ レン非共役ジ エン共重合体			
対照例 1	100	0	0	0	16.0	+20.0	4.0
対照例 2	60	40	0	0	12.6	+22.3	6.4
対照例 3	60	30	10	0	10.8	+16.0	4.9
対照例 4	60	30	0	10	8.8	+14.6	3.5
対照例 5	40	50	5	5	8.0	-5.2	5.3

5

6

	配 合 組 成 重 量 %				曲げ剛性率 psi × 10 ⁴	脆化温度 ℃	MFI g/10分
	ポリプロピ レン	ポリエチレン	スチレン・ブ タジエン共 重合体	エチレン・プロ ピレン非共役ジ エン共重合体			
対照例 6	60	15	20	5	9.6	-28.3	2.2
対照例 7	60	15	5	20	7.9	-25.2	2.0
対照例 8	86	10	2	2	14.2	+0.2	3.7
本発明 1	60	30	5	5	13.7	-27.8	3.7
本発明 2	79	15	4	2	12.5	-13.8	2.9

第1表から明らかな如く本発明の目的とする配合組成物は他の配合組成物に比較して曲げ剛性率は高く、脆化温度が著しく改善されている。

実施例 2

ポリプロピレン(MFI, 4, 密度0.90) 70%, ポリエチレン(MI 5, 密度0.96) 15%, 20%, 48%のスチレンを結合含有するランダム型ゴム状スチレン・ブタジエン共重合体(フィリッブスヘトロリウム社製、商品名ソルブレン ☆

☆303) 5%, 50%のプロピレンを含有するゴム状エチレン・プロピレン非共役ジエン共重合体(USラバー社製、商品名ロイヤレン502) 5%からなる組成物を実施例1と同じ方法にて試験した。脆化温度は-29.0℃、曲げ剛性率は11.2 × 10⁴ psi, M.F.I は3.9であつた。

以下同様にして配合組成を変化させた例を第2表にまとめて示す。

第 2 表

	配 合 組 成 重 量 %				曲げ剛性率 psi × 10 ⁴	脆化温度 ℃	MFI g/10分
	ポリプロピ レン	ポリエチレン	スチレン・ブ タジエン共 重合体	エチレン・プロ ピレン非共役ジ エン共重合体			
対照例 9	100	0	0	0	16.0	+20.0	4.0
対照例 10	70	30	0	0	13.0	+24.7	5.2
対照例 11	70	20	10	0	11.3	+11.3	4.7
対照例 12	70	20	0	10	10.3	+10.5	4.4
対照例 13	40	50	5	5	8.5	-6.1	4.9
対照例 14	60	15	20	5	9.7	-26.5	2.0
対照例 15	60	15	5	20	9.2	-29.2	2.3
対照例 16	86	10	2	2	14.4	+0.6	3.9
本発明 3	70	20	5	5	11.2	-29.0	3.9
本発明 4	80	10	7	3	12.2	-12.6	4.0

特許請求の範囲

1 Aアインタクチックポリプロピレン50~84重量%, B高密度ポリエチレン10~35重量%、C溶液重合法によるスチレン・ブタジエン共重合体の少なくとも2重量%及びDエチレン・プロピレン・非共役ジエン三元重合体の少なくとも2重量%、但しCとDとの合量6~15重量%、から

35 本質的に成ることを特徴とするすぐれた低温耐衝撃性を有する四成分系の成型用樹脂組成物。

引用文献

特 公 昭46-32746